



**PATENT APPLICATION**

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re application of

Docket No: Q77667

Tatsuya IGARASHI, *et al.*

Appln. No.: 10/670,005

Group Art Unit: 1742

Confirmation No.: 6240

Examiner: Not Yet Known

Filed: September 25, 2003

For: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE

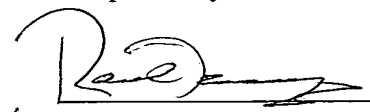
**SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT**

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

Submitted herewith is a certified copy of the priority document on which a claim to priority was made under 35 U.S.C. § 119. The Examiner is respectfully requested to acknowledge receipt of the priority document.

Respectfully submitted,

 *REG. NO. 4A,125*  
for Mark Boland  
Registration No. 32,197

SUGHRUE MION, PLLC  
Telephone: (202) 293-7060  
Facsimile: (202) 293-7860

WASHINGTON OFFICE

**23373**

CUSTOMER NUMBER

Enclosures: Japan 2002-287390

Date: **JAN 26 2004**

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 2 年   9 月 3 0 日  
Date of Application:

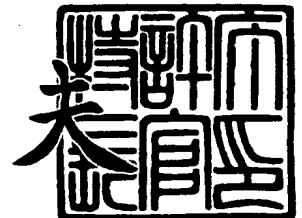
出 願 番 号            特 願 2 0 0 2 - 2 8 7 3 9 0  
Application Number:  
[ST. 10/C]:            [ J P 2 0 0 2 - 2 8 7 3 9 0 ]


出   願   人            富 士 写 真 フ ィ ル ム 株 式 会 社  
Applicant(s):

2 0 0 3 年 1 0 月 2 1 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫





【書類名】 特許願

【整理番号】 31-2637

【提出日】 平成14年 9月30日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H05B 33/14  
C09K 11/00

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内

【氏名】 五十嵐 達也

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内

【氏名】 渡辺 康介

【特許出願人】

【識別番号】 000005201

【氏名又は名称】 富士写真フイルム株式会社

【代理人】

【識別番号】 100105647

【弁理士】

【氏名又は名称】 小栗 昌平

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100105474

【弁理士】

【氏名又は名称】 本多 弘徳

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100108589

【弁理士】

【氏名又は名称】 市川 利光

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100115107

【弁理士】

【氏名又は名称】 高松 猛

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100090343

【弁理士】

【氏名又は名称】 栗宇 百合子

【電話番号】 03-5561-3990

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 092740

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0003489

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

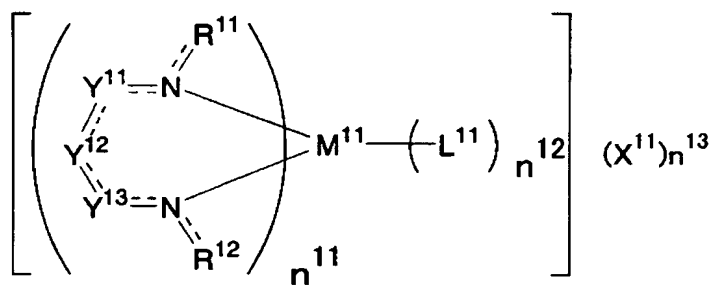
【発明の名称】 有機電界発光素子

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 一対の電極間に発光層を含む少なくとも一層の有機化合物層を有する有機電界発光素子において、発光層中に下記一般式（1）で表される化合物を少なくとも 1 つ含むことを特徴とする有機電界発光素子。

【化 1】

一般式(1)

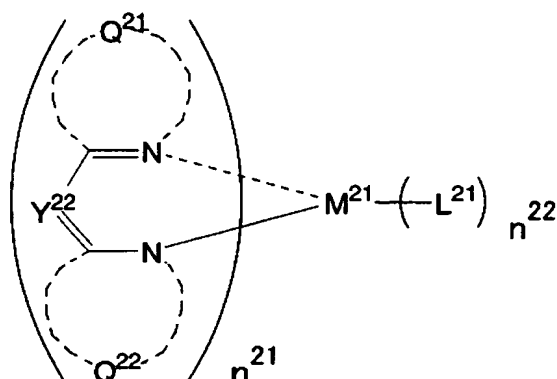


式中、R<sup>11</sup>、R<sup>12</sup>はそれぞれ水素原子または置換基を表し、Y<sup>11</sup>、Y<sup>12</sup>、Y<sup>13</sup>はそれぞれ置換又は無置換の炭素原子、窒素原子、酸素原子、硫黄原子を表し、M<sup>11</sup>は遷移金属イオンを表し、L<sup>11</sup>は配位子を表し、X<sup>11</sup>は対イオンを表す。n<sup>11</sup>は 1～3 を表し、n<sup>12</sup>は 0～4 を表し、n<sup>13</sup>は 0～4 を表す。但し、R<sup>11</sup>、R<sup>12</sup>が結合してポルフィリン環を形成した化合物を除く。

【請求項 2】 一般式（1）で表される化合物が一般式（2）で表される化合物であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

## 【化 2】

## 一般式(2)

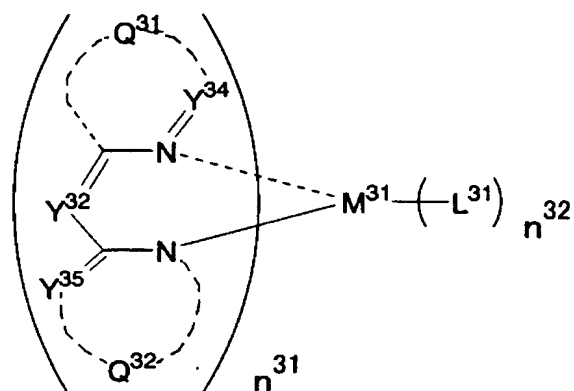


式中、 $Q^{21}$ 、 $Q^{22}$ はそれぞれ含窒素ヘテロ環を形成する基を表し、 $Y^{22}$ は窒素原子、置換又は無置換の炭素原子を表し、 $M^{21}$ は遷移金属イオンを表し、 $L^{21}$ は配位子を表す。 $n^{21}$ は1～3の整数を表し、 $n^{22}$ は0～4を表す。

【請求項3】 一般式(1)で表される化合物が一般式(3)で表される化合物であることを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

## 【化 3】

## 一般式(3)

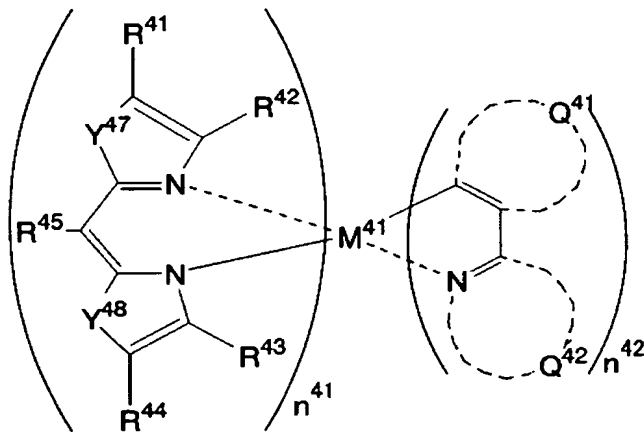


式中、 $Q^{31}$ 、 $Q^{32}$ はそれぞれ含窒素ヘテロ環を形成する基を表し、 $Y^{32}$ 、 $Y^{34}$ 、 $Y^{35}$ はそれぞれ窒素原子、置換又は無置換の炭素原子を表し、 $M^{31}$ は遷移金属イオンを表し、 $L^{31}$ は配位子を表す。 $n^{31}$ は1～3の整数を表し、 $n^{32}$ は0～4を表す。

【請求項4】 一般式(2)で表される化合物が一般式(4)で表される化合物であることを特徴とする請求項2に記載の有機電界発光素子。

## 【化 4】

一般式(4)

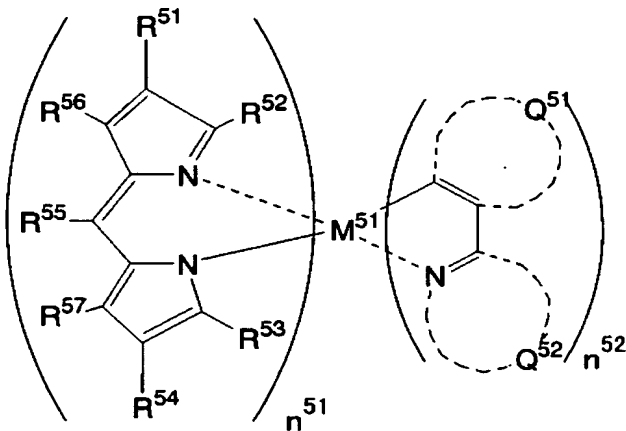


式中、 $R^{41}$ 、 $R^{42}$ 、 $R^{43}$ 、 $R^{44}$ 、 $R^{45}$ はそれぞれ水素原子または置換基を表す。 $Y^{47}$ 、 $Y^{48}$ はそれぞれ酸素原子、硫黄原子、4級の炭素原子、置換又は無置換の窒素原子を表す。 $Q^{41}$ は芳香環を形成する基を表し、 $Q^{42}$ は含窒素ヘテロ環を形成する基を表す。 $n^{41}$ 、 $n^{42}$ はそれぞれ1または2を表す。 $M^{41}$ は遷移金属イオンを表す。

【請求項5】 一般式(3)で表される化合物が一般式(5)で表される化合物であることを特徴とする請求項3に記載の有機電界発光素子。

## 【化 5】

一般式(5)



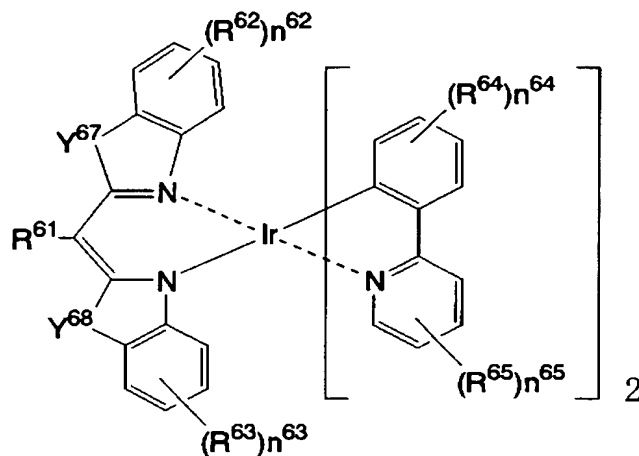
式中、 $R^{51}$ 、 $R^{52}$ 、 $R^{53}$ 、 $R^{54}$ 、 $R^{55}$ 、 $R^{56}$ 、 $R^{57}$ はそれぞれ水素原子または置換基を表す。 $Q^{51}$ は芳香環を形成する基を表し、 $Q^{52}$ は含窒素ヘテロ環を形成す

る基を表す。 $n^{51}$ 、 $n^{52}$ はそれぞれ1または2を表す。 $M^{51}$ は遷移金属イオンを表す。

【請求項6】 一般式(6)で表される化合物。

【化6】

一般式(6)



式中、 $Y^{67}$ 、 $Y^{68}$ はそれぞれ酸素原子、硫黄原子、4級の炭素原子、置換又は無置換の窒素原子を表す。 $R^{61}$ 、 $R^{62}$ 、 $R^{63}$ 、 $R^{64}$ 、 $R^{65}$ はそれぞれ置換基を表す。 $n^{62}$ 、 $n^{63}$ 、 $n^{64}$ 、 $n^{65}$ はそれぞれ0～4を表す。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、電気エネルギーを光に変換して発光できる発光素子、特に、有機電界発光素子に関し、表示素子、ディスプレイ、バックライト、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア、光通信等の分野に好適に使用できる発光素子に関する。また、優れた発光特性を有する新規な発光材料に関する。

【0002】

【従来の技術】

今日、種々の表示素子に関する研究開発が活発であり、中でも有機電界発光(EL)素子(以下、発光素子ということがある)は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため、有望な表示素子として注目されている。例えば、有機化合



物の蒸着により有機薄膜を形成する発光素子が知られている（例えば、非特許文献1参照。）。この文献に記載された発光素子はトリス（8-ヒドロキシキノリナト）アルミニウム錯体（Alq）を電子輸送材料として用い、正孔輸送材料（アミン化合物）と積層させることにより、従来の単層型素子に比べて発光特性を大幅に向上させている。

#### 【0003】

近年、有機EL素子をカラーディスプレイ、白色光源へと適用することが活発に検討されているが、高性能カラーディスプレイ、及び、白色光源を開発する為には 青・緑・赤、それぞれの発光素子の特性を向上する必要が有る。

#### 【0004】

発光素子特性向上の手段として、オルトメタル化イリジウム錯体（Ir(ppy)<sub>3</sub>: Tris-Ortho-Metalated Complex of Iridium (III) with 2-Phenylpyridine）からの発光を利用した緑色発光素子が報告されている（例えば、非特許文献2参照。）。本素子は外部量子収率が8%に達しており、従来素子の限界と言われていた外部量子収率5%を凌駕している。しかしながら、この素子は、緑色発光に限定されている為、ディスプレイとしての適用範囲が狭い欠点を有する。このため、高効率で多色な発光素子の開発が求められていた。

#### 【0005】

また、赤色発光するりん光発光素子としては、白金ポルフィリン錯体を含有する素子が知られているが（例えば、非特許文献3、特許文献1参照。）、最高輝度が低い為、これも改良が求められていた。

#### 【0006】

##### 【非特許文献1】

アプライド フィジックス レターズ (Applied Physics Letters)、米国、51巻、913頁、1987年

##### 【非特許文献2】

アプライド フィジックス レターズ (Applied Physics Letters)、米国、75巻、4頁、1999年

## 【非特許文献 3】

ネイチャー (Nature)、英国、395 巻、151 頁、1998 年

## 【特許文献 1】

米国特許第 6,303,231 B1 号明細書

## 【0007】

## 【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、発光特性が良好な多色発光素子の提供にある。

## 【0008】

## 【課題を解決するための手段】

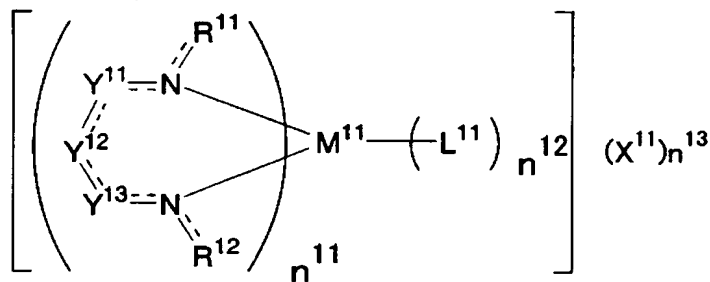
この課題は下記 (1) から (6) に列举する本発明によって達成された。

(1) 一对の電極間に発光層を含む少なくとも一層の有機化合物層を有する有機電界発光素子において、発光層中に下記一般式 (1) で表される化合物を少なくとも 1 つ含むことを特徴とする有機電界発光素子。

## 【0009】

## 【化 7】

一般式 (1)



## 【0010】

式中、 $\text{R}^{11}$ 、 $\text{R}^{12}$ はそれぞれ水素原子または置換基を表し、 $\text{Y}^{11}$ 、 $\text{Y}^{12}$ 、 $\text{Y}^{13}$ はそれぞれ置換又は無置換の炭素原子、窒素原子、酸素原子、硫黄原子を表し、 $\text{M}^{11}$ は遷移金属イオンを表し、 $\text{L}^{11}$ は配位子を表し、 $\text{X}^{11}$ は対イオンを表す。 $n^{11}$ は 1～3 を表し、 $n^{12}$ は 0～4 を表し、 $n^{13}$ は 0～4 を表す。但し、 $\text{R}^{11}$ 、 $\text{R}^{12}$ が結合してポルフィリン環を形成した化合物を除く。

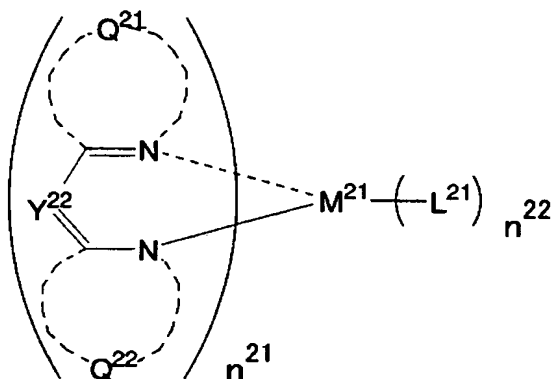
(2) 一般式 (1) で表される化合物が一般式 (2) で表される化合物であるこ

とを特徴とする (1) に記載の有機電界発光素子。

【0011】

【化8】

一般式(2)



【0012】

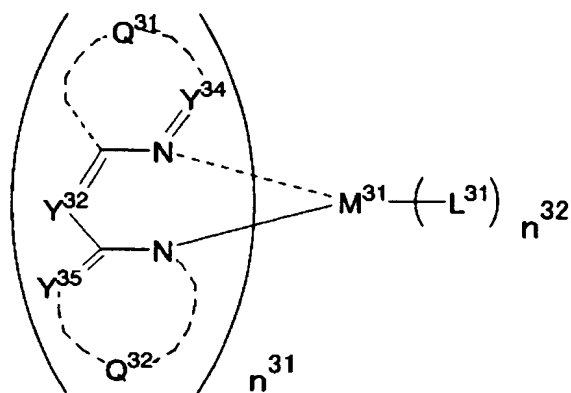
式中、 $Q^{21}$ 、 $Q^{22}$ はそれぞれ含窒素ヘテロ環を形成する基を表し、 $Y^{22}$ は窒素原子、置換又は無置換の炭素原子を表し、 $M^{21}$ は遷移金属イオンを表し、 $L^{21}$ は配位子を表す。 $n^{21}$ は1～3の整数を表し、 $n^{22}$ は0～4を表す。

(3) 一般式(1)で表される化合物が一般式(3)で表される化合物であることを特徴とする (1) に記載の有機電界発光素子。

【0013】

【化9】

一般式(3)



【0014】

式中、 $Q^{31}$ 、 $Q^{32}$ はそれぞれ含窒素ヘテロ環を形成する基を表し、 $Y^{32}$ 、 $Y^{34}$

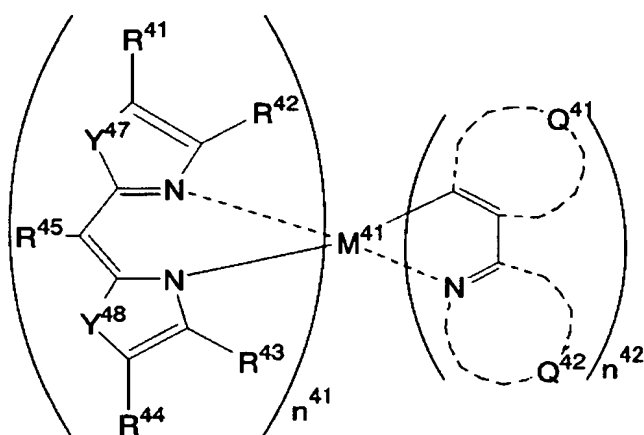
、 $Y^{35}$ はそれぞれ窒素原子、置換又は無置換の炭素原子を表し、 $M^{31}$ は遷移金属イオンを表し、 $L^{31}$ は配位子を表す。 $n^{31}$ は1～3の整数を表し、 $n^{32}$ は0～4を表す。

(4) 一般式(2)で表される化合物が一般式(4)で表される化合物であることを特徴とする(2)に記載の有機電界発光素子。

【0015】

【化10】

一般式(4)



【0016】

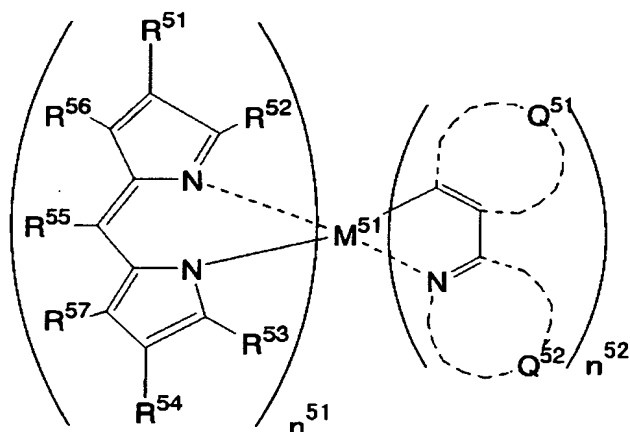
式中、 $R^{41}$ 、 $R^{42}$ 、 $R^{43}$ 、 $R^{44}$ 、 $R^{45}$ はそれぞれ水素原子または置換基を表す。 $Y^{47}$ 、 $Y^{48}$ はそれぞれ酸素原子、硫黄原子、4級の炭素原子、置換又は無置換の窒素原子を表す。 $Q^{41}$ は芳香環を形成する基を表し、 $Q^{42}$ は含窒素ヘテロ環を形成する基を表す。 $n^{41}$ 、 $n^{42}$ はそれぞれ1または2を表す。 $M^{41}$ は遷移金属イオンを表す。

(5) 一般式(3)で表される化合物が一般式(5)で表される化合物であることを特徴とする(3)に記載の有機電界発光素子。

【0017】

## 【化 1 1】

一般式(5)



## 【0018】

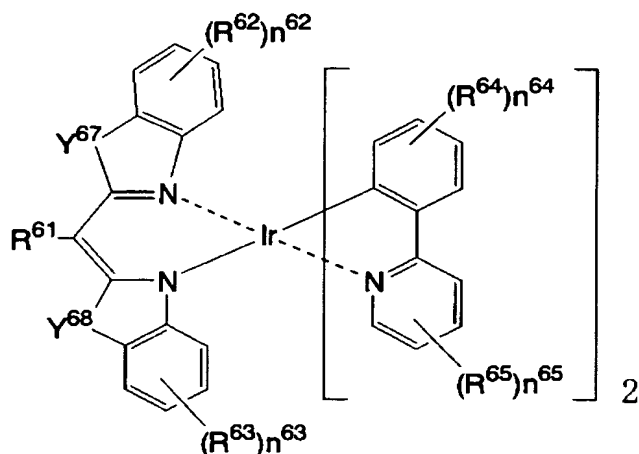
式中、 $R^{51}$ 、 $R^{52}$ 、 $R^{53}$ 、 $R^{54}$ 、 $R^{55}$ 、 $R^{56}$ 、 $R^{57}$ はそれぞれ水素原子または置換基を表す。 $Q^{51}$ は芳香環を形成する基を表し、 $Q^{52}$ は含窒素ヘテロ環を形成する基を表す。 $n^{51}$ 、 $n^{52}$ はそれぞれ1または2を表す。 $M^{51}$ は遷移金属イオンを表す。

(6) 一般式(6)で表される化合物。

## 【0019】

## 【化 1 2】

一般式(6)



## 【0020】

式中、 $Y^{67}$ 、 $Y^{68}$ はそれぞれ酸素原子、硫黄原子、4級の炭素原子、置換又は

無置換の窒素原子を表す。R<sup>61</sup>、R<sup>62</sup>、R<sup>63</sup>、R<sup>64</sup>、R<sup>65</sup>はそれぞれ置換基を表す。n<sup>62</sup>、n<sup>63</sup>、n<sup>64</sup>、n<sup>65</sup>はそれぞれ0～4を表す。

【0021】

【発明の実施の形態】

まず、一般式(1)について説明する。一般式(1)においてR<sup>11</sup>-N間、N-Y<sup>11</sup>間、Y<sup>11</sup>-Y<sup>12</sup>間、Y<sup>12</sup>-Y<sup>13</sup>間、Y<sup>13</sup>-N間、N-R<sup>12</sup>間の実線と点線で表した結合は、単結合であっても二重結合であっても良いことを示している。

【0022】

R<sup>11</sup>、R<sup>12</sup>はそれぞれ水素原子または置換基を表す。R<sup>11</sup>はY<sup>11</sup>と結合して含窒素ヘテロ環を形成しても良く、R<sup>12</sup>はY<sup>13</sup>と結合して含窒素ヘテロ環を形成しても良い。R<sup>11</sup>、R<sup>12</sup>で表される置換基としては、例えば、Y<sup>11</sup>またはY<sup>13</sup>と連結基を介して結合し含窒素ヘテロ環を形成する基（形成される含窒素ヘテロ環としては、ピロール環、ベンゾオキサゾール環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、トリアジン環、ピラゾール環、イミダゾール環、トリアゾール環などが挙げられる。）、アルキル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメチル、エチル、i s o -プロピル、t e r t -ブチル、n -オクチル、n -デシル、n -ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばビニル、アリル、2 -ブテニル、3 -ペンテニルなどが挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばプロパルギル、3 -ペンチニルなどが挙げられる。）、アリアル基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニル、p -メチルフェニル、ナフチル、アントラニルなどが挙げられる。）、アミノ基（好ましくは炭素数0～30、より好ましくは炭素数0～20、特に好ましくは炭素数0～10であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノ、イミノなどが挙げられる。）、アルコキシ基（好ましくは

炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～10 であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。)、アリアルオキシ基(好ましくは炭素数 6～30、より好ましくは炭素数 6～20、特に好ましくは炭素数 6～12 であり、例えばフェニルオキシ、1-ナフチルオキシ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。)、ヘテロ環オキシ基(好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばピリジルオキシ、ピラジルオキシ、ピリミジルオキシ、キノリルオキシなどが挙げられる。)、アシル基(好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数 2～30、より好ましくは炭素数 2～20、特に好ましくは炭素数 2～12 であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリアルオキシカルボニル基(好ましくは炭素数 7～30、より好ましくは炭素数 7～20、特に好ましくは炭素数 7～12 であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～12 であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、カルバゾリル、アゼピニルなどが挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数 3～40、より好ましくは炭素数 3～30、特に好ましくは炭素数 3～24 であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。)、シリルオキシ基(好ましくは炭素数 3～40、より好ましくは炭素数 3～30、特に好ましくは炭素数 3～24 であり、例えばトリメチルシリルオキシ、トリフェニルシリルオキシなどが挙げられる。)、隣接する窒素原子と炭素窒素二重結合を形成する基などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。

## 【0023】

R<sup>11</sup>、R<sup>12</sup>はそれぞれ置換基が好ましく、Y<sup>11</sup>またはY<sup>12</sup>と連結基を介して結合し含窒素ヘテロ環を形成する基がより好ましい。

## 【0024】

Y<sup>11</sup>、Y<sup>12</sup>、Y<sup>13</sup>は置換又は無置換の炭素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子を表す。炭素原子上の置換基としては例えば、アルキル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメチル、エチル、i s o -プロピル、t e r t -ブチル、n -オクチル、n -デシル、n -ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばビニル、アリル、2 -ブテニル、3 -ペンテニルなどが挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばプロパルギル、3 -ペンチニルなどが挙げられる。）、アリール基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニル、p -メチルフェニル、ナフチル、アントラニルなどが挙げられる。）、アミノ基（好ましくは炭素数0～30、より好ましくは炭素数0～20、特に好ましくは炭素数0～10であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノなどが挙げられる。）、アルコキシ基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2 -エチルヘキシロキシなどが挙げられる。）、アリールオキシ基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルオキシ、1 -ナフチルオキシ、2 -ナフチルオキシなどが挙げられる。）、ヘテロ環オキシ基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばピリジルオキシ、ピラジルオキシ、ピリミジルオキシ、キノリルオキシなどが挙げられる。）、アシル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好



ましくは炭素数 1 ～ 1 2 であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基 (好ましくは炭素数 2 ～ 3 0、より好ましくは炭素数 2 ～ 2 0、特に好ましくは炭素数 2 ～ 1 2 であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリーロキシカルボニル基 (好ましくは炭素数 7 ～ 3 0、より好ましくは炭素数 7 ～ 2 0、特に好ましくは炭素数 7 ～ 1 2 であり、例えばフェニロキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基 (好ましくは炭素数 2 ～ 3 0、より好ましくは炭素数 2 ～ 2 0、特に好ましくは炭素数 2 ～ 1 0 であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシルアミノ基 (好ましくは炭素数 2 ～ 3 0、より好ましくは炭素数 2 ～ 2 0、特に好ましくは炭素数 2 ～ 1 0 であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基 (好ましくは炭素数 2 ～ 3 0、より好ましくは炭素数 2 ～ 2 0、特に好ましくは炭素数 2 ～ 1 2 であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、アリーロキシカルボニルアミノ基 (好ましくは炭素数 7 ～ 3 0、より好ましくは炭素数 7 ～ 2 0、特に好ましくは炭素数 7 ～ 1 2 であり、例えばフェニロキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基 (好ましくは炭素数 1 ～ 3 0、より好ましくは炭素数 1 ～ 2 0、特に好ましくは炭素数 1 ～ 1 2 であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基 (好ましくは炭素数 0 ～ 3 0、より好ましくは炭素数 0 ～ 2 0、特に好ましくは炭素数 0 ～ 1 2 であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基 (好ましくは炭素数 1 ～ 3 0、より好ましくは炭素数 1 ～ 2 0、特に好ましくは炭素数 1 ～ 1 2 であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基 (好ましくは炭素数 1 ～ 3 0、より好ましくは炭素数 1 ～ 2 0、特に好ましくは炭素数 1 ～ 1 2 であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリールチオ基 (好ましくは炭素数 6 ～ 3 0、より好ましくは炭素数 6 ～ 2 0、特に好ましくは炭素数 6 ～ 1 2 であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、ヘテロ環チオ基 (

好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばピリジルチオ、2-ベンズイミゾリルチオ、2-ベンズオキサゾリルチオ、2-ベンズチアゾリルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基 (好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基 (好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基 (好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基 (好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子 (例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシル基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基 (好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～12 であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、カルバゾリル、アゼピニルなどが挙げられる。)、シリル基 (好ましくは炭素数 3～40、より好ましくは炭素数 3～30、特に好ましくは炭素数 3～24 であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。)、シリルオキシ基 (好ましくは炭素数 3～40、より好ましくは炭素数 3～30、特に好ましくは炭素数 3～24 であり、例えばトリメチルシリルオキシ、トリフェニルシリルオキシなどが挙げられる。) などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。

#### 【0025】

窒素上の置換基としては、前記 R<sup>11</sup> で説明した置換基が挙げられる。

#### 【0026】

Y<sup>11</sup>、Y<sup>13</sup>は置換炭素原子、窒素原子が好ましく、置換炭素原子がより好ましく、置換炭素原子でかつR<sup>11</sup>またはR<sup>12</sup>と結合して含窒素ヘテロ環を形成する基（形成される含窒素ヘテロ環としては、例えばピロール環、ベンゾオキサゾール環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、トリアジン環、ピラゾール環、イミダゾール環、トリアゾール環などが挙げられる）がさらに好ましい。Y<sup>12</sup>は置換又は無置換の炭素原子が好ましく、無置換炭素原子がより好ましい。

#### 【0027】

M<sup>11</sup>は遷移金属イオンを表す。遷移金属イオンとしては特に限定されないが、イリジウムイオン、白金イオン、レニウムイオン、ルテニウムイオンが好ましく、イリジウムイオン、白金イオンがより好ましく、イリジウムイオンが特に好ましい。

#### 【0028】

L<sup>11</sup>は配位子を表す。配位子としては、例えば、「Photochemistry and Photo physics of Coordination Compounds」 Springer-Verlag社 H. Yersin著 1987年発行、「有機金属化学—基礎と応用—」 裳華房社 山本明夫著 1982年発行 等に記載の配位子が挙げられ、好ましくは、ハロゲン配位子（塩素配位子、フッ素配位子など）、含窒素ヘテロ環配位子（例えばビピリジル配位子、フェナントロリン配位子、フェニルピリジン配位子、ピラゾリルピリジン配位子、ベンズイミダゾリルピリジン配位子、ピコリン酸配位子、チエニルピリジン配位子、ピラゾリルピリジン配位子、イミダゾリルピリジン配位子、トリアゾリルピリジン配位子、ピラゾリルベンゾオキサゾール配位子、及び、それらの縮環体（例えばフェニルキノリン配位子、ベンゾチエニルピリジン配位子、ビキノリン配位子、など）など）、ジケトン配位子（例えばアセチルアセトン配位子）、ニトリル配位子（例えばアセトニトリル配位子など）、CO配位子、イソニトリル配位子（例えばt-ブチルイソニトリル配位子など）、りん配位子（例えば、ホスフィン誘導体、亜りん酸エステル誘導体、ホスフィニン誘導体など）、カルボン酸配位子（例えば酢酸配位子など）であり、より好ましくはジケトン配位子、2座の含窒素ヘテロ環配位子であり、さらに好ましくはアセチルアセトン配位子、フェニルピリジン配位子、チエニルピリジン配位子、ピコリン酸配位子、及び、

それらの縮環体であり、特に好ましくは、フェニルピリジン配位子、チエニルピリジン配位子、及び、それらの縮環体である。

#### 【0029】

X<sup>11</sup>は対イオンを表す。対イオンとしては、特に限定されないが、好ましくはアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、ハロゲンイオン、パークロレートイオン、PF<sub>6</sub>イオン、アンモニウムイオン（例えばテトラメチルアンモニウムイオンなど）、ボレートイオン、ホスホニウムイオンであり、より好ましくはパークロレートイオン、PF<sub>6</sub>イオンである。

#### 【0030】

n<sup>11</sup>は1～3を表し、1、2が好ましい。n<sup>12</sup>は0～4を表し、0～2が好ましい。n<sup>13</sup>は0～4を表し、0、1が好ましく、0がより好ましい。

#### 【0031】

なお、一般式（1）で表される化合物のうち、R<sup>11</sup>、R<sup>12</sup>が結合してポルフィリン環を形成した化合物を除く。

#### 【0032】

一般式（1）で表される化合物は一般式（2）、一般式（3）で表される化合物またはその互変異性体が好ましく（一般式（2）で表される化合物またはその互変異性体がより好ましい）、一般式（4）、一般式（5）で表される化合物またはその互変異性体がより好ましく（一般式（4）で表される化合物またはその互変異性体がより好ましい）、一般式（6）で表される化合物がさらに好ましい。

#### 【0033】

一般式（2）について説明する。Q<sup>21</sup>、Q<sup>22</sup>はそれぞれ含窒素ヘテロ環を形成する基を表す。Q<sup>21</sup>、Q<sup>22</sup>で形成される含窒素ヘテロ環としては特に限定されないが、例えば、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、チアゾール環、オキサゾール環、ピロール環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、及び、それらを含む縮環体（例えば、キノリン環、ベンゾアゾール環、ベンゾイミダゾール環、インドレニン環など）及び、これらの互変異性体（例えば、後述の一般式（

5) において、R<sup>51</sup>、R<sup>52</sup>、R<sup>56</sup>が置換している含窒素 5 員環はピロールの互変異性体と定義する) が挙げられる。

【0034】

Q<sup>21</sup>、Q<sup>22</sup>で形成される含窒素ヘテロ環は好ましくは、ピリジン環、キノリン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、ベンゾアゾール環、及び、これらの互変異性体であり、より好ましくはピリジン環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサゾール環、ピロール環、ベンゾアゾール環、及び、これらの互変異性体であり、さらに好ましくは、ベンゾアゾール環、及び、これらの互変異性体である。

【0035】

Y<sup>22</sup>は窒素原子、置換又は無置換の炭素原子を表し、置換又は無置換の炭素原子が好ましく、無置換炭素原子がより好ましい。

【0036】

M<sup>21</sup>、L<sup>21</sup>はそれぞれ前記M<sup>11</sup>、L<sup>11</sup>と同義であり、好ましい範囲も同じである。

【0037】

n<sup>21</sup>は 1～3 の整数を表し、1、2 が好ましい。n<sup>22</sup>は 0～4 を表し、0～2 が好ましい。

【0038】

一般式 (3) について説明する。

【0039】

Q<sup>31</sup>、Q<sup>32</sup>はそれぞれ含窒素ヘテロ環を形成する基を表す。Q<sup>31</sup>、Q<sup>32</sup>で形成される含窒素ヘテロ環としては特に限定されないが、例えば、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、チアゾール環、オキサゾール環、ピロール環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、及び、それらを含む縮環体 (例えば、キノリン環、ベンゾアゾール環、ベンゾイミダゾール環、インドレニン環など) 及び

、これらの互変異性体（例えば、後述の一般式（5）において、 $R^{51}$ 、 $R^{52}$ 、 $R^{56}$ が置換している含窒素5員環はピロールの互変異性体と定義する）が挙げられる。

#### 【0040】

$Q^{31}$ 、 $Q^{32}$ で形成される含窒素ヘテロ環は好ましくは、ピリジン環、キノリン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、ベンゾアゾール環、及び、これらの互変異性体であり、より好ましくはピリジン環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサゾール環、ピロール環、ベンゾアゾール環、及び、これらの互変異性体であり、より好ましくはピロール環、ベンゾアゾール環、及び、これらの互変異性体であり、さらに好ましくは、ベンゾアゾール環、及び、これらの互変異性体である。

#### 【0041】

$Y^{32}$ は前記 $Y^{22}$ と同義であり、好ましい範囲も同じである。 $Y^{34}$ 、 $Y^{35}$ はそれぞれ窒素原子、置換又は無置換の炭素原子を表し、置換または無置換の炭素原子が好ましい。

#### 【0042】

$M^{31}$ 、 $L^{31}$ 、 $n^{31}$ 、 $n^{32}$ はそれぞれ前記 $M^{21}$ 、 $L^{21}$ 、 $n^{21}$ 、 $n^{22}$ と同義であり、好ましい範囲も同じである。

#### 【0043】

一般式（4）について説明する。 $R^{41}$ 、 $R^{42}$ 、 $R^{43}$ 、 $R^{44}$ 、 $R^{45}$ はそれぞれ水素原子または置換基を表す。置換基として前記炭素原子上の置換基で説明した基が挙げられる。

#### 【0044】

$R^{41}$ 、 $R^{42}$ 、 $R^{43}$ 、 $R^{44}$ は水素原子、アルキル基、アリール基、 $R^{41}$ と $R^{42}$ または $R^{43}$ と $R^{44}$ が結合して環構造（例えばベンゾ縮環）を形成する基が好ましく、アルキル基、アリール基、 $R^{41}$ と $R^{42}$ または $R^{43}$ と $R^{44}$ が結合して環構造（例えばベンゾ縮環）を形成する基がより好ましく、 $R^{41}$ と $R^{42}$ または $R^{43}$ と $R^{44}$ が結合して環構造（例えばベンゾ縮環）を形成する基がさらに好ましい。

## 【0045】

R<sup>45</sup>は水素原子、アルキル基が好ましく、水素原子がより好ましい。

## 【0046】

Y<sup>47</sup>、Y<sup>48</sup>はそれぞれ酸素原子、硫黄原子、4級の炭素原子、置換又は無置換の窒素原子を表し（窒素原子上の置換基としてはアルキル基、アリール基が好ましい）、酸素原子、置換窒素原子が好ましく、酸素原子がより好ましい。

## 【0047】

Q<sup>41</sup>は芳香環を形成する基を表す。Q<sup>41</sup>で形成される芳香環としては、ベンゼン環、ナフタレン環、フェナンスレン環、アントラセン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、トリアジン環、ピラゾール環、イミダゾール環、トリアゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、フラン環、チオフェン環、及び、これらの縮環体（ベンゾチオフェンなど）が挙げられ、ベンゼン環、チオフェン環が好ましく、ベンゼン環がより好ましい。

## 【0048】

Q<sup>42</sup>は含窒素ヘテロ環を形成する基を表す。Q<sup>42</sup>で形成される含窒素ヘテロ環としては、例えば、前記Q<sup>21</sup>で説明した基が挙げられ、好ましくは、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、ベンゾアゾール環、及び、これらの縮環体（例えばキノリン環、イソキノリン環など）であり、より好ましくは、ピリジン環、ベンゾアゾール環、キノリン環、イソキノリン環であり、さらに好ましくは、ピリジン環、キノリン環である。

## 【0049】

n<sup>41</sup>、n<sup>42</sup>は1または2を表す。n<sup>41</sup>は1が好ましく、n<sup>42</sup>は2が好ましい。M<sup>41</sup>は前記M<sup>11</sup>と同義であり、好ましい範囲も同じである。

## 【0050】

一般式(5)について説明する。R<sup>51</sup>、R<sup>52</sup>、R<sup>53</sup>、R<sup>54</sup>、R<sup>56</sup>、R<sup>57</sup>はそれぞれ前記R<sup>41</sup>と同義であり、好ましい範囲も同じである。R<sup>55</sup>は前記R<sup>45</sup>と同義であり、好ましい範囲も同じである。Q<sup>51</sup>、Q<sup>52</sup>、M<sup>51</sup>、n<sup>51</sup>、n<sup>52</sup>はそれぞれ前記Q<sup>41</sup>、Q<sup>42</sup>、M<sup>41</sup>、n<sup>41</sup>、n<sup>42</sup>と同義であり、好ましい範囲も同じである。

。

## 【0051】

一般式(6)について説明する。Y<sup>67</sup>、Y<sup>68</sup>はそれぞれ前記Y<sup>47</sup>と同義であり、好ましい範囲も同じである。

## 【0052】

R<sup>61</sup>は前記R<sup>45</sup>と同義であり、好ましい範囲も同じである。R<sup>62</sup>、R<sup>63</sup>、R<sup>64</sup>、R<sup>65</sup>はそれぞれ置換基を表す。置換基としては例えば、前記R<sup>41</sup>で説明した基が挙げられ、アルキル基、アリール基、アルケニル基、ハロゲン原子、アルコキシ基、ジアルキルアミノ基、隣接した置換基どうしが結合して縮環構造を形成する基が好ましく、アルキル基、フッ素原子がより好ましい。n<sup>62</sup>、n<sup>63</sup>、n<sup>64</sup>、n<sup>65</sup>が複数の場合は複数のR<sup>62</sup>、R<sup>63</sup>、R<sup>64</sup>、R<sup>65</sup>は同じであっても異なってもよく、また、隣接する基どうしが結合して、縮環構造(ベンゾ縮環など)を形成しても良い。

## 【0053】

n<sup>62</sup>、n<sup>63</sup>、n<sup>64</sup>、n<sup>65</sup>はそれぞれ0~4を表し、0~2が好ましく、0、1がより好ましく、0がさらに好ましい。

## 【0054】

本発明の化合物は低分子化合物であっても良く、また、オリゴマー化合物、ポリマー化合物(重量平均分子量(ポリスチレン換算)は好ましくは1000~500000、より好ましくは2000~1000000、さらに好ましくは3000~1000000である。)であっても良い。ポリマー化合物の場合、一般式(1)で表される構造がポリマー主鎖中に含まれても良く、また、ポリマー側鎖に含まれていても良い。また、ポリマー化合物の場合、ホモポリマー化合物であっても良く、共重合体であっても良い。本発明の化合物は低分子化合物が好ましい。

## 【0055】

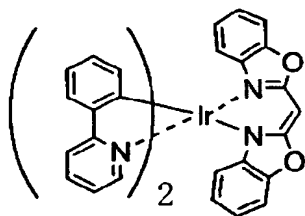
次に本発明の化合物の化合物例を示すが、本発明はこれに限定されない。

## 【0056】

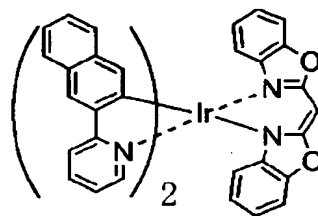
## 【化13】



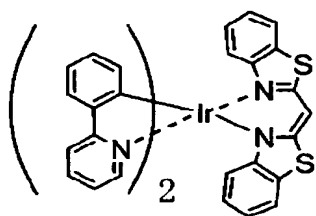
(1-1)



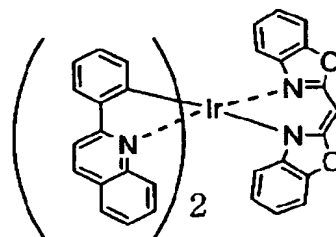
(1-6)



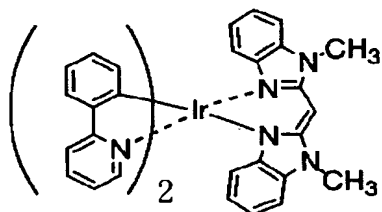
(1-2)



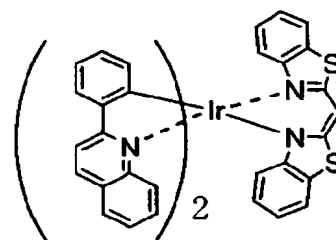
(1-7)



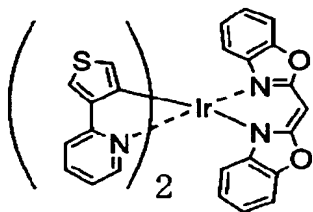
(1-3)



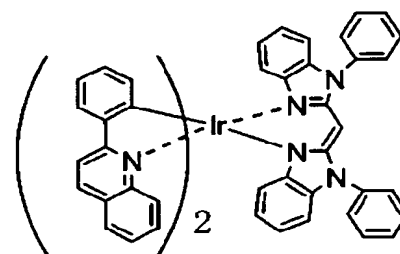
(1-8)



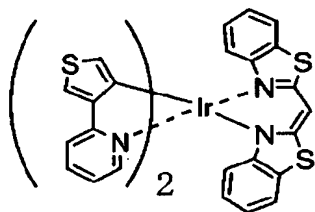
(1-4)



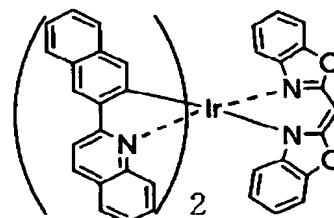
(1-9)



(1-5)



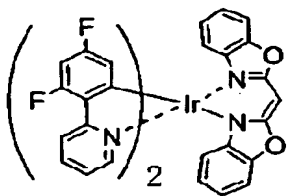
(1-10)



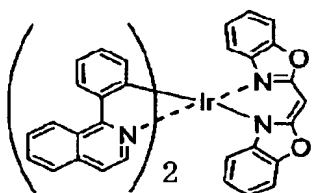
【0057】

【化14】

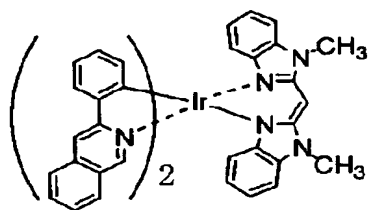
(1-11)



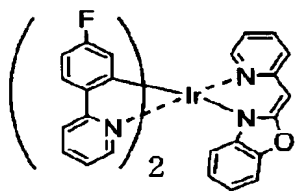
(1-12)



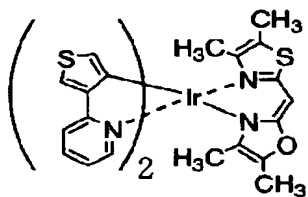
(1-13)



(1-14)

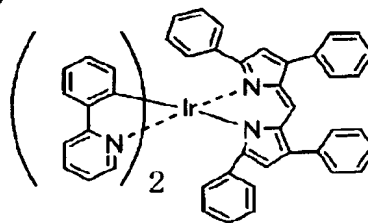


(1-15)

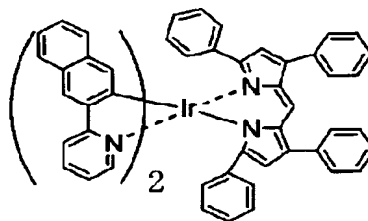


【0058】

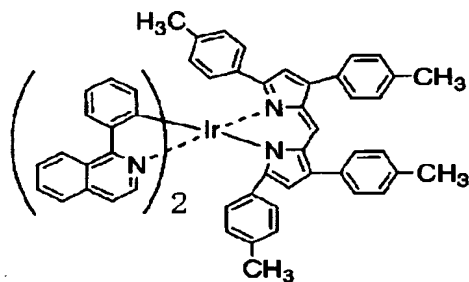
(1-16)



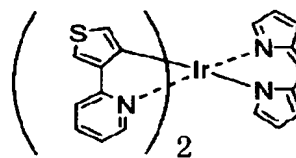
(1-17)



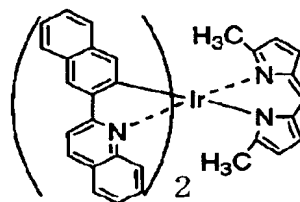
(1-18)



(1-19)

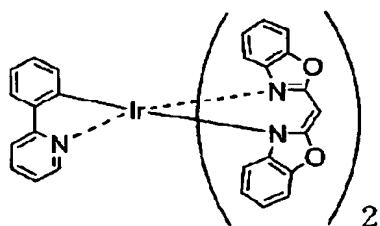


(1-20)

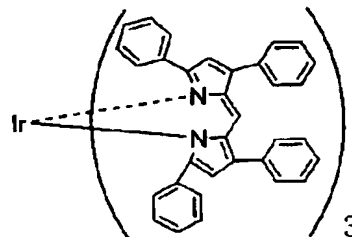


## 【化15】

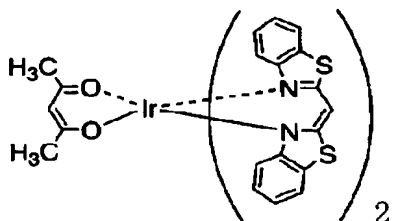
(1-21)



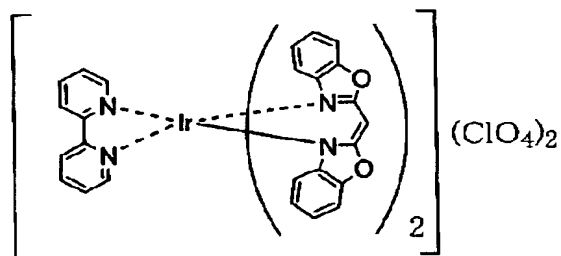
(1-26)



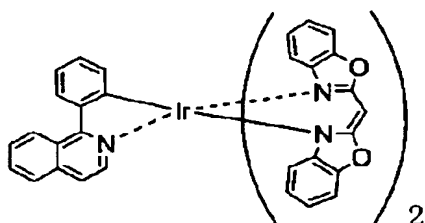
(1-22)



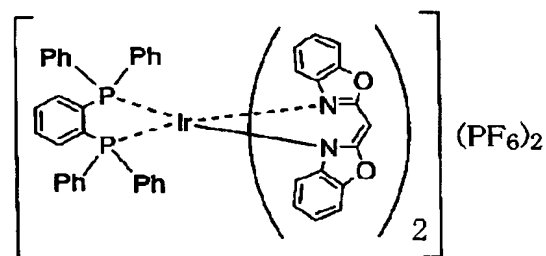
(1-27)



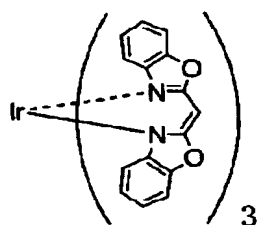
(1-23)



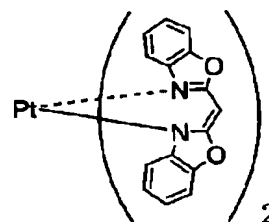
(1-28)



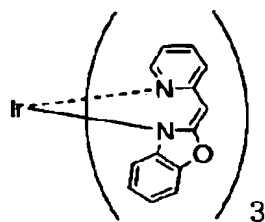
(1-24)



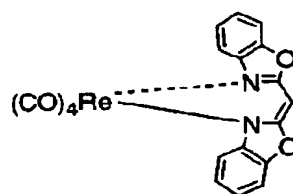
(1-29)



(1-25)



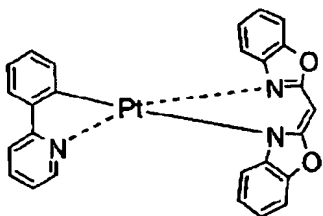
(1-30)



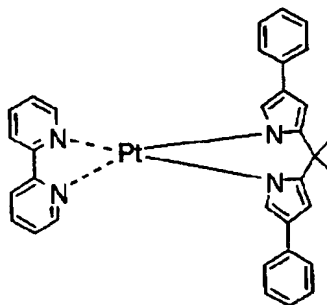
## 【0059】

## 【化16】

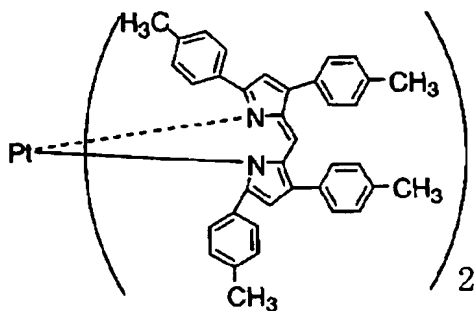
(1-31)



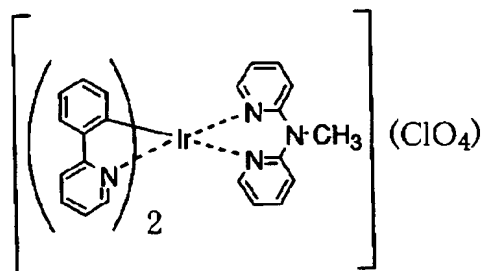
(1-36)



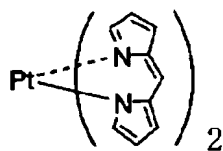
(1-32)



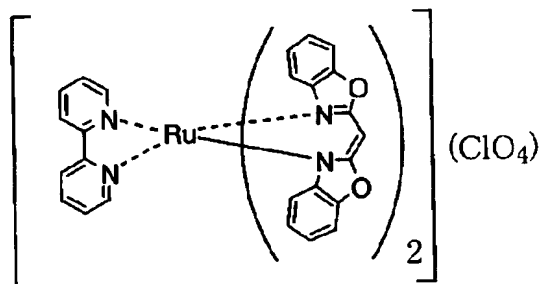
(1-37)



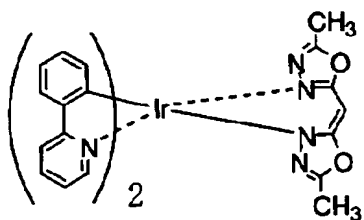
(1-33)



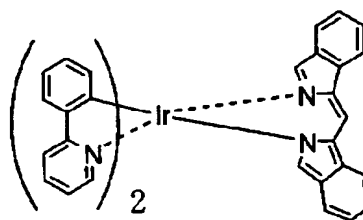
(1-38)



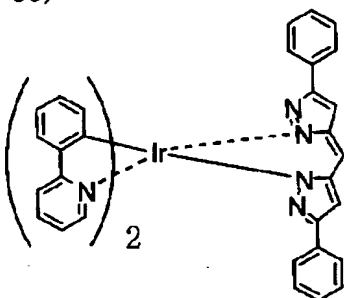
(1-34)



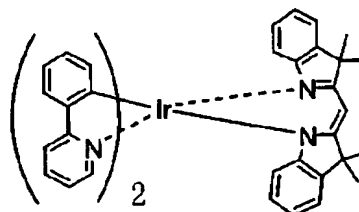
(1-39)



(1-35)



(1-40)



## 【0060】

本発明の化合物は種々の手法で合成することができる。例えば、配位子、またはその解離体と遷移金属化合物を溶媒（例えば、ハロゲン系溶媒、アルコール系溶媒、エーテル系溶媒、エステル系溶媒、ケトン系溶媒、ニトリル系溶媒、アミド系溶媒、スルホン系溶媒、スルホキサイド系溶媒、水などが挙げられる）の存在下、もしくは、溶媒非存在下、塩基の存在下（無機、有機の種々の塩基、例えば、ナトリウムメトキサイド、*t*-ブトキシカリウム、トリエチルアミン、炭酸カリウムなどが挙げられる）、もしくは、塩基非存在下、室温以下、もしくは加熱により合成することができる。加熱の際には、通常の加熱以外にマイクロウェーブで加熱する手法も有効である。

## 【0061】

本発明の化合物を合成する際の反応時間は反応の活性により異なり、特に限定されないが、1分以上5日以下が好ましく、5分以上3日以下がより好ましく、10分以上1日以下がさらに好ましい。

## 【0062】

本発明の化合物を合成する際の反応温度は反応の活性により異なり特に限定されないが、0℃以上300℃以下が好ましく、5℃以上200℃以下がより好ましく、10℃以上150℃以下がさらに好ましく、15℃以上120℃以下が特に好ましい。

## 【0063】

本発明の化合物は、目的とする錯体の部分構造を形成している配位子（例えば、ビスベンズオキサゾリルメチレン構造を有する錯体を合成する際は、ビスベンズオキサゾリルメチレン配位子、アセチルアセトン構造を有する錯体を合成する際は、アセチルアセトン配位子、フェニルピリジン構造を有する錯体を合成する際は、フェニルピリジン配位子など）を遷移金属化合物に対し、好ましくは0.5当量～10当量、より好ましくは0.8当量～6当量、さらに好ましくは1当量～4当量加えて合成することができる。

## 【0064】

次に、本発明の化合物を含有する発光素子に関して説明する。本発明の発光素

子は、本発明の化合物を利用する素子であればシステム、駆動方法、利用形態などは特に問わないが、一般式(1)で表される化合物を発光材料として利用する物が好ましい。代表的な発光素子として有機EL(エレクトロルミネッセンス)素子を挙げることができる。

#### 【0065】

本発明の化合物を含有する発光素子は、該化合物を発光層もしくは発光層を含む有機化合物層に、0.1質量%~100質量%含有するのが好ましく、1質量%~50質量%含有するのがより好ましく、1質量%~20質量%含有するのが特に好ましい。

#### 【0066】

本発明の発光素子は陰極と発光層の間に、イオン化ポテンシャル5.9eV以上(より好ましくは6.0eV以上)の化合物を含有する層を介在させるのが好ましく、イオン化ポテンシャル5.9eV以上の電子輸送層を用いるのがより好ましい。

#### 【0067】

本発明の化合物を含有する発光素子の有機層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法(スプレーコート法、ディップコート法、含浸法、ロールコート法、グラビアコート法、リバーコート法、ロールブラッシュ法、エアーナイフコート法、カーテンコート法、スピンコート法、フローコート法、バーコート法、マイクログラビアコート法、エアードクターコート法、ブレードコート法、スクイズコート法、トランスファーロールコート法、キスコート法、キャストコート法、エクストルージョンコート法、ワイヤーバーコート法、スクリーンコート法等)、インクジェット法、印刷法、転写法などの方法が用いられ、特性面、製造面で抵抗加熱蒸着、コーティング法、転写法が好ましい。

#### 【0068】

本発明の発光素子は陽極、陰極の一对の電極間に発光層を含む少なくとも一層の有機化合物層(「有機層」と同義である)を有する素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく

、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。

#### 【0069】

陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、仕事関数が4 eV以上の材料で構成されていることが好ましい。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ（ITO）等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～500 nmである。

#### 【0070】

陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2 mm以上、好ましくは0.7 mm以上のものを用いる。

陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法（ゾルゲル法など）、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。

陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

## 【0071】

陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属ハロゲン化物、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K等）及びそのフッ化物または酸化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Ca等）及びそのフッ化物または酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテリビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4 eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極は、上記化合物及び混合物の単層構造だけでなく、上記化合物及び混合物を含む積層構造を取ることでもある。例えば、アルミニウム/フッ化リチウム、アルミニウム/酸化リチウムの積層構造が好ましい。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5  $\mu$ mの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1  $\mu$ mであり、更に好ましくは100 nm～1  $\mu$ mである。

陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法、転写法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。

陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百 $\Omega$ /□以下が好ましい。

## 【0072】

発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれ



ば何でもよく、本発明の化合物のほか、例えばベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾチアゾール、スチリルベンゼン、ポリフェニル、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、ナフタルイミド、クマリン、ペリレン、ペリノン、オキサジアゾール、アルダジン、ピラリジン、シクロペンタジエン、ビススチリルアントラセン、キナクリドン、ピロロピリジン、チアジアゾロピリジン、シクロペンタジエン、スチリルアミン、芳香族ジメチリデイン化合物、8-キノリノールの金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物、有機シラン、イリジウムトリスフェニルピリジン錯体、及び、白金ポルフィリン錯体に代表される遷移金属錯体、及び、それらの誘導体等が挙げられる。発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5  $\mu$ mの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1  $\mu$ mであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。

発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、インクジェット法、印刷法、LB法、転写法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着、コーティング法である。

#### 【0073】

発光層は単一化合物で形成されても良いし、複数の化合物で形成されても良い。また、発光層は一つであっても複数であっても良く、それぞれの層が異なる発光色で発光して、例えば、白色を発光しても良い。単一の発光層から白色を発光しても良い。発光層が複数の場合は、それぞれの発光層は単一材料で形成されていても良いし、複数の化合物で形成されていても良い。

#### 【0074】

正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミダゾール、ポリアリーールアルカン、ピラゾリン、ピラズロン、フェニレンジアミン、アリーールアミン、アミノ置換カルコン、スチリ

ルアントラセン、フルオレノン、ヒドラゾン、スチルベン、シラザン、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、有機シラン、カーボン膜、本発明の化合物、及び、それらの誘導体等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5  $\mu$ mの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1  $\mu$ mであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記正孔注入輸送材料を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法、インクジェット法、印刷法、転写法が用いられる。コーティング法の場合、正孔注入輸送材料を樹脂成分と共に溶解または分散してコーティングすることが可能である。樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

#### 【0075】

電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい。その具体例としては、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミダゾール、フルオレノン、アントラキノジメタン、アントロン、ジフェニルキノン、チオピランジオキシド、カルボジイミド、フルオレニリデンメタン、ジスチリルピラジン、ナフタレン、ペリレン等の芳香環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン、8-キノリノールの金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される

各種金属錯体、有機シラン、本発明の化合物、及び、それらの誘導体等が挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常  $1\text{ nm} \sim 5\text{ }\mu\text{ m}$  の範囲のものが好ましく、より好ましくは  $5\text{ nm} \sim 1\text{ }\mu\text{ m}$  であり、更に好ましくは  $10\text{ nm} \sim 500\text{ nm}$  である。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送材料を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法、インクジェット法、印刷法、転写法などが用いられる。コーティング法の場合、電子注入輸送材料を樹脂成分と共に溶解または分散してコーティングすることが可能である。樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

#### 【0076】

保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>等の金属酸化物、MgF<sub>2</sub>、LiF、AlF<sub>3</sub>、CaF<sub>2</sub>等の金属フッ化物、SiN<sub>x</sub>、SiO<sub>x</sub>N<sub>y</sub>などの窒化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーとを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。

保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（分子線エピタキシ）法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法（高周波励起イオンプレーティング法）、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガス

ソースCVD法、コーティング法、印刷法、転写法を適用できる。

# 【0077】

## 【実施例】

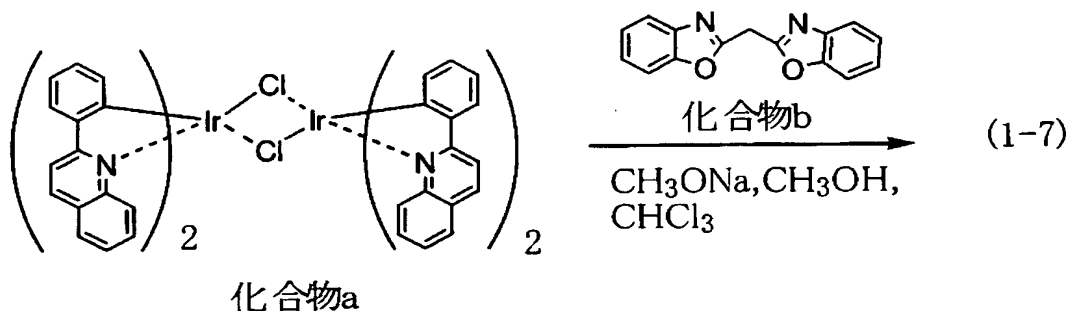
以下に本発明の具体的実施例を述べるが、本発明の実施の態様はこれらに限定されない。

## 【化合物（1-7）の合成】

化合物a（特開2001-345183号公報に記載の方法で合成） 0.2 g、化合物b（マロン酸誘導体とo-アミノフェノールから合成） 0.1 gにクロロホルム5 mlを加え、この溶液に、ナトリウムメトキシドのメタノール溶液（28質量%） 0.09 mlを加え、還流下2時間攪拌した。反応液を室温に冷却し、クロロホルム20 ml、水20 mlを加え分液し、有機層を濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒クロロホルム）で精製し、化合物（1-7）を0.05 g得た。化合物（1-7）をクロロホルムに溶解し、UV光を照射したところ、 $\lambda_{\max}=595\text{ nm}$ の赤橙色の発光が得られた。

# 【0078】

## 【化17】



# 【0079】

## （比較例1）

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、TPD（N，N'-ジフェニル-N，N'-ジ（m-トリル）-ベンジジン）を30 nm蒸着し、この上に、化合物AとAlq（トリス（8-ヒドロキシキノリナト）アルミニウム錯体）を1対17の比率（質量比）で45 nm共蒸着した。有機薄膜上にパターンニングしたマスク（発光面積が4 mm×5 mmとなるマスク）を設置し、蒸着装置内でマ

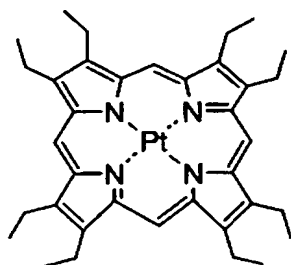
グネシウムと銀を7対1の比率(質量)で50nm蒸着し、この上に、銀を100nm蒸着した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8を用いて測定した。その結果、最高輝度280cd/m<sup>2</sup>の赤色発光が得られた。

(比較例2)

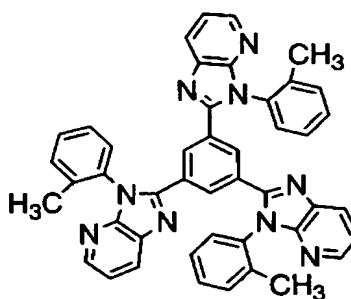
洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、TPD(N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(m-トリル)-ベンジジン)を50nm蒸着し、この上に、化合物Aと化合物Cを1対17の比率(質量比)で36nm共蒸着し、この上にアゾール化合物Bを36nm蒸着した。有機薄膜上にパターンニングしたマスク(発光面積が4mm×5mmとなるマスク)を設置し、蒸着装置内でフッ化リチウムを3nm蒸着した後、アルミニウム60nmを蒸着し、素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8を用いて測定した。その結果、最高輝度300cd/m<sup>2</sup>の赤色発光が得られた。

【0080】

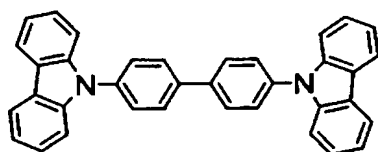
【化18】



化合物A



化合物B



化合物C

【0081】

**(実施例 1)**

化合物 A の代わりに本発明の化合物 (1-7) を用い、比較例 2 と同様に素子作製評価した。その結果、最高輝度  $3200\text{ cd/m}^2$  の赤橙色発光が得られた。

**(実施例 2)**

ポリビニルカルバゾール 40 mg、2-(4-tert-ブチルフェニル)-5-(p-ビフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール 12 mg、本発明の化合物 (1-7) 1 mg をジクロロエタン 2.5 ml に溶解し、洗浄した ITO 基板上にスピンコートした (2000 rpm、20 秒)。有機層の膜厚は約 100 nm であった。この有機層の上に、比較例 1 と同様に、マグネシウムと銀を 7 対 1 の比率 (質量) で 50 nm 蒸着し、この上にさらに銀を 100 nm 蒸着して陰極を形成した。こうして作製した素子を評価した結果、最高輝度  $1500\text{ cd/m}^2$  の赤橙色発光が得られた。

**【0082】**

同様に、他の本発明の化合物を用いても、多色発光する高輝度発光素子を作製することができる。

**【0083】****【発明の効果】**

本発明の発光素子は高輝度発光可能であり、また、本発明の化合物を用いると多色 (特に橙～赤色) に発光する素子を作製することが可能である。本発明の発光素子は、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア、光通信等の分野に好適に使用できる。また、本発明の化合物は、医療用途、蛍光増白剤、写真用材料、UV 吸収材料、レーザー色素、カラーフィルター用染料、色変換フィルター等にも適用可能である。

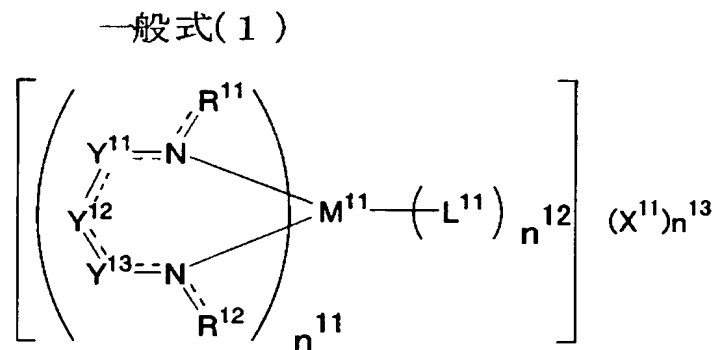
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 発光特性が良好な多色有機電界発光素子を提供する。

【解決手段】 発光層中に下記一般式(1)で表される化合物を少なくとも1つ含ませることにより、発光特性が良好な有機電界発光素子が得られる。

【化1】



式中、 $\text{R}^{11}$ 、 $\text{R}^{12}$ はそれぞれ水素原子または置換基を表し、 $\text{Y}^{11}$ 、 $\text{Y}^{12}$ 、 $\text{Y}^{13}$ はそれぞれ置換又は無置換の炭素原子、窒素原子、酸素原子、硫黄原子を表し、 $\text{M}^{11}$ は遷移金属イオンを表し、 $\text{L}^{11}$ は配位子を表し、 $\text{X}^{11}$ は対イオンを表す。 $n^{11}$ は1～3を表し、 $n^{12}$ は0～4を表し、 $n^{13}$ は0～4を表す。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 2 - 2 8 7 3 9 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 5 2 0 1 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 1 4 日

[変更理由]

新規登録

住 所

神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地

氏 名

富士写真フイルム株式会社